



(19) BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

Offenlegungsschrift

DE 101 04 849 A 1

(51) Int. Cl.⁷:
B 01 J 8/00
B 01 F 5/16

DE 101 04 849 A 1

(21) Aktenzeichen: 101 04 849.1
(22) Anmeldetag: 3. 2. 2001
(43) Offenlegungstag: 26. 7. 2001

Mit Einverständnis des Anmelders offengelegte Anmeldung gemäß § 31 Abs. 2 Ziffer 1 PatG

(66) Innere Priorität:
100 05 693.8 09.02.2000

(72) Erfinder:
Adler, Roland, Prof. Dr.-Ing., 06217 Merseburg, DE;
Schröder, Frank, Dr.-Ing., 04683 Belgershain, DE;
Platzer, Bernd, Prof. Dr.-Ing.habil., 09235
Burkhardtsdorf, DE

(71) Anmelder:
Adler, Roland, Prof. Dr.-Ing., 06217 Merseburg, DE;
Platzer, Bernd, Prof. Dr.-Ing.habil., 09235
Burkhardtsdorf, DE

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

(54) Modularer gradientenfreier Versuchsreaktor für heterogen-gaskatalytische Reaktionen an körnigen Katalysatorpartikeln

(57) Die Erfindung betrifft einen modularen gradientenfreien Versuchsreaktor für heterogen-gaskatalytische Reaktionen an körnigen Katalysatorpartikeln zur Ermittlung der Reaktionskinetik und Charakterisierung der Katalysatorleistung.

Sie ist dadurch gekennzeichnet, daß ein modular aufgebauter Rotationsmischer, bestehend aus:

- dem mit Katalysator gefüllten Katalysatorkorb (1b),
- der wählbaren Anzahl von Flügelrädern (4) und von dahinter bzw. dazwischen liegenden Leitwerken (2) bzw. (3), mit einem Treibstrahlmischer, bestehend aus

- dem Diffusor, der als Hohlwellenstumpf oder auch als Nabe (7) ausgeführt werden kann und

- der Treibstrahldüse (8),

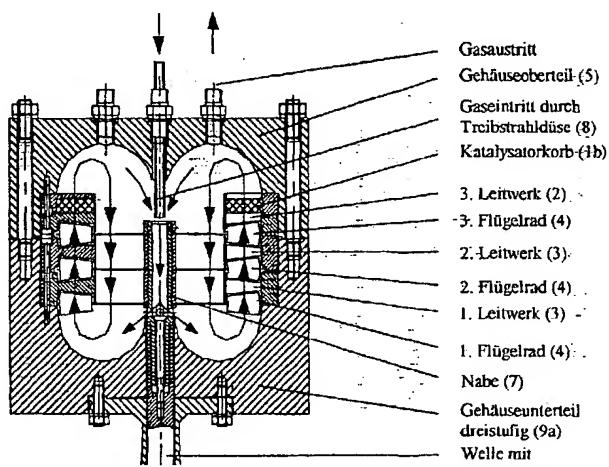
in einem geteilten, gut wärmeleitenden Gehäuse (5), (9a), das

- zur Strömungskanalisation und

- zur ausgezeichneten wärmetechnischen Anbindung der Reaktortemperierung an Rotationsmischer und Strömungskanalisation dient, kombiniert werden.

Der Treibstrahlmischer ist umso wirksamer, je größer der Eintrittsgassstrom ist, während das Verhältnis von Förderstrom des Rotationsmischers zum Eintrittsgassstrom sich mit zunehmendem Reaktordurchsatz verschlechtert. Wegen dieser gegenläufigen Tendenz führt die Kombination beider Mischer zu der angestrebten weitgehenden Unabhängigkeit vom Eintrittsgassstrom.

Der Versuchsreaktor dient zur Ermittlung unverfälschter reaktionskinetischer Primärdaten und zur direkten Messung der katalytischen Leistung ohne die Einwirkung von Temperatur- und...



DE 101 04 849 A 1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft einen modularen gradientenfreien Versuchsreaktor für heterogen-gaskatalytische Reaktionen an körnigen Katalysatorpartikeln zur Ermittlung der Reaktionskinetik und zur Charakterisierung der Katalysatorleistung.

Es ist bekannt, gradientenfreie Versuchsreaktoren zur Ermittlung der Reaktionskinetik und zur Charakterisierung der Katalysatorleistung einzusetzen. Durch die intensive Verwirbelung der gasförmigen Reaktanden in und um dem Katalysatorraum werden Temperatur- und Konzentrationsgradienten in diesen Laborreaktoren weitgehend beseitigt. Dadurch ist es möglich, physikalische Transportvorgänge praktisch auszuschließen und die katalytische Wirksamkeit in Abhängigkeit von den Versuchsparametern (Partialdrücke, Temperatur und Absolutdruck) direkt zu messen. Im Verlauf der technischen Entwicklung haben sich Versuchsreaktoren mit innerer Durchmischung aufgrund ihrer kompakten Bauweise und anderer Vorteile gegenüber solchen mit äußerem Kreislauf durchgesetzt. Man unterscheidet bei ihnen mehrere Wirkprinzipien für die Durchmischung:

- Turbulente Kreislaufgasströmung, hervorgerufen durch ein Radial- oder Axialflügelrad mit Rotationsantrieb (Berty-Reaktor, Chem. Eng. Progr. 70 (1974) 78, Mehrschichtreaktor Chem. Techn. 39 (1987) 328 und DD 2 34 369 A1, Turbo-Reaktor, Chem. Techn. 30 (1978) 555 und DD 96 154, Multifunktioneller Differentialreaktor, DE 44 05 306 C1),
- Richtungswechselnde, turbulente Gasströmung durch eine feststehende Katalysatorpatrone realisiert durch einen mit einem Axialmotor angetriebenen Kolben (Hubkolbenreaktor, Chem. Techn. 39 (1987) 154 und DD 1 32 279),
- Rotierender Katalysatorkorb als Mischorgan mit (Minimalraumreaktor Chem. Techn. 39 (1987) 237 und DD 1 60 327, Turboreaktor T1, T2, Chem. Techn. 40 (1988) 193, DD 2 09 282, DD 2 65 699 A1, Multireaktor mit Turboantrieb DD 2 81 353 A5) oder ohne (CABERRY-Reaktor / Spinning Basket Reactor md. Eng. Chem. 56 (1964) 39) Überlagerung einer axial pro Umlauf wechselnden Strömungsrichtung im relativ wenig strömenden Gas,
- Ausnutzung des Treibstrahlprinzipes zur turbulenten Verwirbelung des Kreislaufstromes mit dem Zulaufstrom und zur Erzeugung einer Umlaufströmung durch die fest angeordnete Katalysatorschicht (Chem. Techn. 20 (1968) 449, Chem. Ing. Tech. 43 (1971) 1176).

Die bekannten technischen Lösungen haben Nachteile bezüglich der Realisierung der angestrebten Gradientenfreiheit insbesondere bei geringen Gasdichten (Normalsdruckbereich, höhere Reaktionstemperaturen) und unterschiedlichen Reaktordurchsätzen, wie sie zur Erzielung von Teilmischsätzen bei reaktionskinetischen Experimenten unverzichtbar sind. Neue Untersuchungen zeigen (Adler et al. Chem. Ing. Tech. 72 (2000) 584), daß die Versuchsreaktoren mit bewegtem Mischer bei Drücken bis 150 kPa und Temperaturen über 200°C sowie Reaktordurchsätzen über $2 \text{ kg Kat}^{-1} \cdot \text{h}^{-1}$ nicht mehr ausreichend durchmischen, selbst wenn die Drehzahl der Rührerwelle bzw. die Frequenz des Hubkolbens wesentlich erhöht werden. Bei Treibstrahlreaktoren ist es schon seit längerem bekannt, daß sie bei geringen Drücken und Gasdurchsätzen das für die Umwälzung erforderliche Vakuum hinter der Einströmdüse nicht mehr erzeugen können. Die Gradientenminimierung wird zusätzlich erschwert, wenn beim Einsatz kleiner Partikeln der Druckver-

lust der Katalysatorschicht(en) zunimmt und sich dadurch die Verwirbelung in den Komzwischenräumen wegen der geringeren Strömungsgeschwindigkeit weiter verkleinert. Die thermische Anbindung der Katalysatorräume ist unzureichend bzw. bei bewegtem Katalysatorraum gar nicht möglich, was bei stärker exotherm ablaufenden Reaktionen zu unvertretbar großen Temperaturgradienten führt, die allein über die Gasumwälzung nicht beseitigt werden können.

Entstehende Temperaturgradienten durch ungleichmäßige 10 Wärmezu- und -abfuhr über die Meßeinrichtungen, den Reaktorhals mit der Welle, über den Gasein- und Austritt und über die Reaktortemperierung können nicht befriedigend abgebaut werden.

Aufgabe der Erfindung ist es, einen gradientenfreien, modularen aufgebauten Versuchsreaktor auch für geringe Gasdichten zu entwickeln, der bei kleinen und großen Reaktordurchsätzen gut durchmischt, die Anpassung der Druckerzeugung des Mischorgans an den Druckverlust der Katalysatorpartikeln gestattet und diese möglichst direkt an die 20 temperierte Reaktorwand anbindet, um die unvermeidlichen Temperaturgradienten weitestgehend auszugleichen.

Die Aufgabe wird durch die in den Patentansprüchen aufgeführten Merkmale dadurch gelöst, daß ein modular aufgebauter Rotationsmischer (15), bestehend aus

- dem mit Katalysator gefüllten Katalysatorkorb (1a, b) mit variablem Innenraum und
- der nach dem Druckverlust in der Katalysatorschüttung wählbaren Anzahl von Flügelrädern (4) und von dahinter bzw. dazwischen liegenden Leitwerken (2) bzw. (3),

mit einem nach dem Treibstrahlprinzip wirkenden Treibstrahlmischer (14), bestehend aus

- dem Diffusor, der als Hohlwellenstumpf (6a) oder auch als Nabe (7) austauschbar für verschiedene Flügelradzahlen ausgeführt werden kann und
- der Treibstrahldüse (8),

in einem geteilten, gut wärmeleitenden und damit temperatursausgleichenden Gehäuse (5), (9a, b),

- zur Strömungskanalisation für Rotations- und Treibstrahlmischer gleichermaßen und
- zur ausgezeichneten wärmetechnischen Anbindung der Reaktortemperierung an Rotationsmischer (15) und Strömungskanalisation dient,

50 kombiniert wird, daß der durch den Rotationsmischer (15) kanalisierte Gasstrom durch den direkt an die temperierte Reaktorwand angekoppelten Katalysatorkorb (1a,b) variabler Größe strömt, radial nach innen umgelenkt wird, durch das bzw. die Flügelräder innen zurückströmt und vor dem erneuten äußeren Einlauf in das erste Flügelrad (4) mit dem Treibstrahlumlaufstrom vermischt wird, daß das über die Treibstrahldüse (8) zugeführte Gas der Re-

60 aktanden in den Diffusor, der als freifliegender Hohlwellenstumpf (6a) des Rotationsmischers (15) oder auch als Nabe (7) ausgeführt werden kann, eingedüst wird, es einen Teilstrom des radial umgelenkten Gasstromes des Rotationsmischers (15) ansaugt und man dieses Gemisch vor dem äußeren Einlauf in das erste Flügelrad über radiale Aussparungen am Grund des Hohlwellenstumpfes bzw. der Nabe in den Umlaufstrom des Rotationsmischers (15) gemäß Anspruch 65 2 einspeist.

dass die Speichen der Flügelräder alternativ auch als den inneren Rückstrom fördernde Flügel ausgeführt werden.

Es ist vorteilhaft, daß die Vermischung nahezu unabhängig vom Reaktordurchsatz stets sehr intensiv erfolgt, weil bei geringem Gaseintrittsstrom der Rotationsmischer (15) im Verhältnis zu diesem einen großen Gasstrom umwälzt, während bei großem Gaseintrittsstrom der Treibstrahl die Umwälzung effektiv unterstützt. Ein weiterer Vorteil besteht in der Anpassungsfähigkeit der Förderleistung an den durch die Katalysatorpartikeln verursachten Druckverlust, durch den modulären Aufbau des Rotationsmischers (15) und die Variabilität der Größe des Katalysatorraumes. Die gute wärmetechnische Ankopplung der Partikeln direkt an das temperierte, gut wärmeleitende Reaktorgehäuse ermöglicht einen effektiven Temperaturausgleich durch Wärmeleitung, welcher die Gradientenminimierung unterstützt. Dadurch, daß auch neuartige, ungeschmierte Lager aus Keramik (12) eingesetzt werden können, sind Verunreinigungen der Reaktanden vermeidbar und man erreicht ausgezeichnete Dauerlaufegenschaften auch bei hohen Betriebstemperaturen.

Beispiel 1

Der komplette Versuchsreaktor gemäß Fig. 1 mit den Reaktorvarianten der einstufigen Ausführung mit kleinem Katalysatorkorb gemäß Fig. 2 bzw. einer dreistufigen Ausführung mit großem Katalysatorkorb gemäß Fig. 3 sowie der schematischen Charakterisierung eines Flügelrades in Fig. 4 und des Leitwerkes in Fig. 5 besteht aus den Funktionselementen:

Temperierung (11)/Isolierung (10).

Dreistufiger modular aufgebauter Rotationsmischer (15), mit Katalysator gefüllter Katalysatorkorb (1b) mit variablen Innenraum mit temperaturausgleichender Ummantelung durch Gehäuseoberteil (5) und Gehäuseunterteil (9a).

Treibstrahlmischer (14), bestehend aus Diffusor, Nabe (7) (oder in diesem Beispiel nicht dargestellt aus einer Hohlwelle für drei Flügelräder) und Treibstrahldüse (8).

Hermetisch abgeschlossenes Antriebsgehäuse (17), das Temperierung/Isolierung, Rotationsmischer (15) und Treibstrahlmischer (14) trägt.

Mit Kugellagern fixierte Antriebswelle, welche in diesem Ausführungsbeispiel eine Nabe (7) für drei Flügelräder (4) trägt und deren Ende als Diffusor des Treibstrahlmischers (14) ausgebildet ist.

Magnetkupplung (13), die Motor und Gehäuse miteinander verbindet und das Moment des Motors an die Welle überträgt.

Elektromotor (16), dessen Drehzahl im Bereich von 0 bis 8000 min^{-1} wahlweise eingestellt werden kann und dessen Fuß die Montage des Reaktors an einem Gestell gestaltet.

Zur Montage des Rotationsmischers (15) und zum Austausch des Katalysatorkorbes (1) bzw. zum Katalysatorwechsel ist das Reaktorgehäuse in ein Gehäuseoberteil (5) und ein Gehäuseunterteil (9a) geteilt. Die Wandstärke und das Material (z. B. CuNi2Si galvanisch vernickelt) sind so gewählt, daß Temperaturgradienten weitestgehend ausgeglichen werden. Die Treibstrahldüse (8) ist im Zentrum des Gehäuseoberteils (5) fest installiert. Komplettiert wird der Versuchsreaktor durch eine Temperierung (11), die z. B. als elektrische Heizung ausgeführt werden kann, die Isolierung (10) sowie Stutzen für die Druck- und Temperaturmessungen, die Messungen direkt im Katalysatorkorb (1a), im Gasraum und in der Gehäusewand ermöglichen.

Die in Fig. 2 als einstufiger Reaktor mit kleinem Katalysatorkorb dargestellte Variante eignet sich besonders für Katalysatoranordnungen mit geringem Druckverlust. Der Hohlwellenstumpf (6a) der Antriebswelle dient zur Fixie-

rung des Flügelrades (4) (Fig. 4), welches zur Erhöhung der Umwälzung über außen liegende, axial fördernde Flügel und innen über Speichen zur Versteifung verfügt. Die Flügel sind in bekannter Weise strömungstechnisch günstig profiliert (in der Zeichnung nicht dargestellt). Die Speichen führen nur zu einem sehr geringen Druckverlust. Zur Erhöhung der Förderleistung können anstelle der Speichen alternativ auch strömungstechnisch günstig dimensionierte Flügel installiert werden, die durch ihren Anstellwinkel in bekannter Weise die Rückströmung unterstützen. In Strömungsrichtung außen hinter dem Flügelrad befindet sich ein Leitwerk (2), bestehend aus Befestigungsring, Dichtring und Leitflügeln, wodurch der Vordruck des in den Katalysatorkorb (1a) gerichteten Gasstromes erhöht wird. Der anschließende Katalysatorkorb ist an das Gehäuseoberteil (5) angeschraubt. Zwei Schrauben werden zum Kontaktwechsel gelöst und in einfacher Weise wieder montiert.

Flügelrad (4), Leitwerk (2) und Katalysatorkorb (1a) sind nach innen gegenüber dem radial umgelenkten und zurückströmenden Gasstrom abgedichtet. Die Einspeisung des Eintrittsgasstromes erfolgt über die zentral angeordnete Treibstrahldüse (8) in den Hohlwellenstumpf (6a). Dadurch entsteht ein Unterdruck, der einen Teilstrom des aus dem Katalysatorkorb rückströmenden Gases ansaugt, mit dem Eintrittsgas vermischt und diesen über die Aussparungen am Fuß des Hohlwellenstumpfes in den Kreislaufstrom einspeist.

Der Treibstrahlmischer (14) ist umso wirksamer, je größer der Eintrittsgasstrom ist, während das Verhältnis von Förderstrom des Rotationsmischers (15) zum Eintrittsgasstrom sich mit zunehmendem Reaktordurchsatz verschlechtert. Wegen dieser gegenläufigen Tendenz führt die Kombination beider Mischer zu der angestrebten weitgehenden Unabhängigkeit vom Eintrittsgasstrom.

Beispiel 2

Die in Fig. 3 mit größerem Katalysatorraum dargestellte dreistufige Reaktorvariante eignet sich besonders für Katalysatoranordnungen mit großem Druckverlust.

Der prinzipielle Aufbau des Versuchsreaktors ist analog zum ersten Beispiel mit folgender Modifikation:

Das Gehäuseunterteil (9b) wird durch das verlängerte Gehäuseunterteil (9a), der Katalysatorkorb (1a) wird durch den Katalysatorkorb (1b) und die Hohlwelle (6a) durch die Nabe für drei Flügelräder (7) und die Welle mit Nabenaufnahme (6b) ersetzt. Das größere Gehäuseunterteil (9a) ermöglicht den zusätzlichen Einbau von zwei Flügelräder (4) und zwei Leitwerken (3). Mit dieser Aufrüstung erreicht man die gewünschte, zur Anzahl der Lafräder proportionale Vergrößerung des Druckes vor der Einstromung in den Katalysatorkorb. Die Verlängerung des Hohlwellenstumpfes bzw. der Nabe führt gleichzeitig zur Verbesserung der Treibstrahlmischung.

Patentansprüche

1. Modularer gradientenfreier Versuchsreaktor für heterogen-gaskatalytische Reaktionen an körnigen Katalysatorpartikeln zur Ermittlung der Reaktionskinetik und zur Charakterisierung der Katalysatorleistung dadurch gekennzeichnet,

dass ein modular aufgebauter Rotationsmischer (15), bestehend aus

- dem mit Katalysator gefüllten Katalysatorkorb (1a, b) mit variablen Innenraum und
- der nach dem Druckverlust in der Katalysator-schüttung wählbaren Anzahl von Flügelräder (4)

und von dahinter bzw. dazwischenliegenden Leitwerken (2) bzw. (3), mit einem nach dem Treibstrahlprinzip wirkenden Treibstrahlmischer (14), bestehend aus

- dem Diffusor, der als Hohlwellenstumpf (6a) 5 oder auch als Nabe (7) austauschbar für verschiedene Flügelradzahlen ausgeführt werden kann und
- der Treibstrahldüse (8),

in einem geteilten, gut wärmeleitenden und damit temperaturausgleichenden Gehäuse (5) (9a, b), das

- zur Strömungskanalisierung für Rotations- und Treibstrahlmischer gleichermaßen und
- zur ausgezeichneten wärmetechnischen Anbindung der Reaktortemperierung an Rotationsmischer (15) und Strömungskanalisierung dient,

kombiniert wird.

2. Versuchsreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der durch den Rotationsmischer (15) kanalisierte Gasstrom durch den direkt an die temperierte Reaktorwand angekoppelten Katalysatorkorb (1a, b) 20 variabler Größe strömt; radial nach innen umgelenkt wird, durch das bzw. die Flügelräder innen zurückstromt und vor dem erneuten äußeren Einlauf in das erste Flügelrad (4) mit dem Treibstrahlumlaufstrom vermischt wird.

3. Versuchsreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das über die Treibstrahldüse (8) zugeführte Gas der Reaktanden in den Diffusor, der als frei-fließender Hohlwellenstumpf (6a) des Rotationsmischers (15) oder auch als Nabe (7) ausgeführt werden kann, eingedüst wird, es einen Teilstrom des radial umgelenkten Gasstromes des Rotationsmischers (15) ansaugt und man dieses Gemisch vor dem äußeren Einlauf in das erste Flügelrad über radiale Aussparungen 35 am Grund des Hohlwellenstumpfes bzw. der Nabe in den Umlaufstrom des Rotationsmischers (15) gemäß Anspruch 2 einspeist.

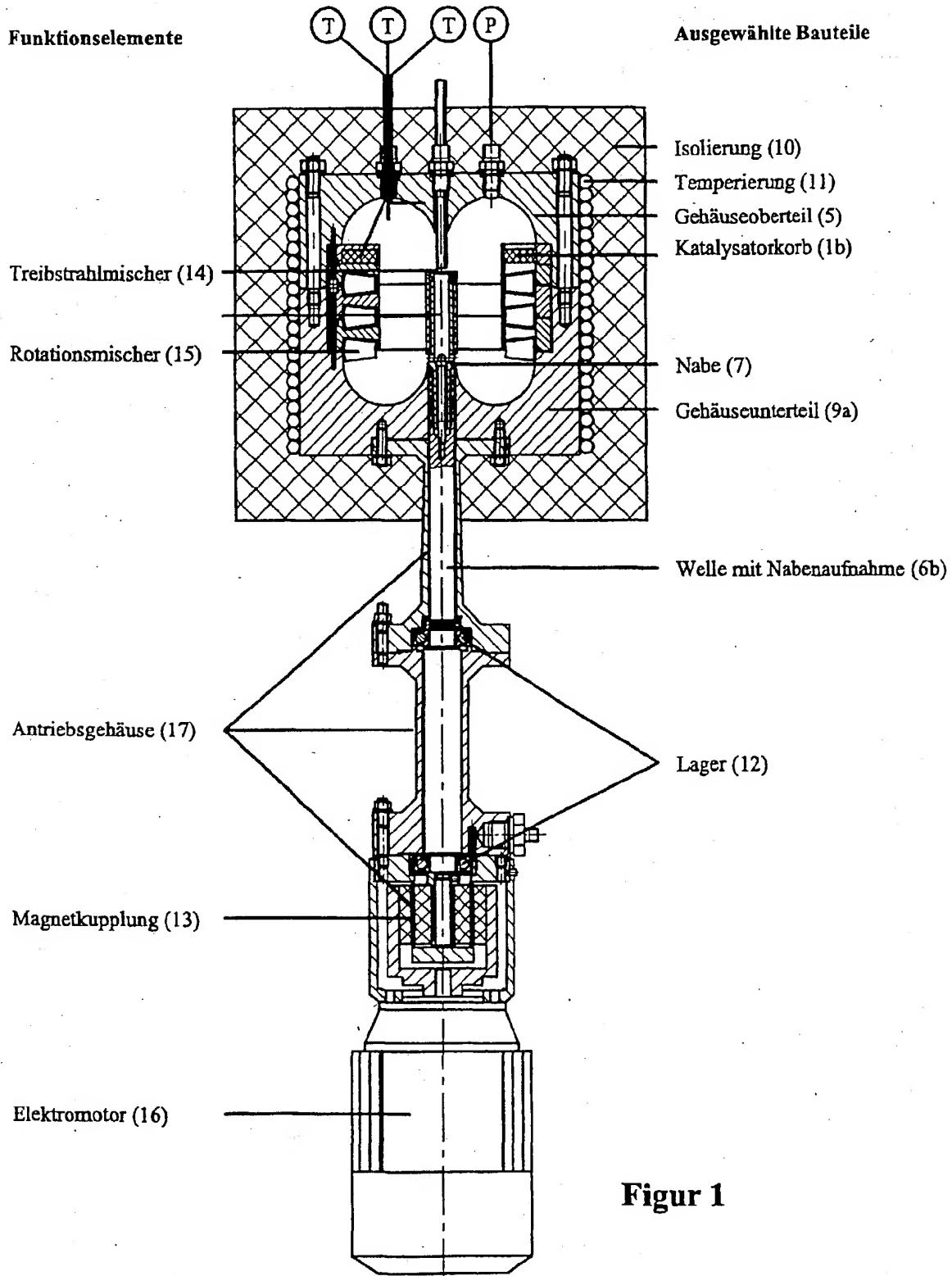
4. Versuchsreaktor nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß die Speichen der Flügelräder alternativ 40 auch als den inneren Rückstrom fördernde Flügel ausgeführt werden.

Hierzu 3 Seite(n) Zeichnungen

- Leerseite -

Modularer gradientenfreier Versuchsreaktor

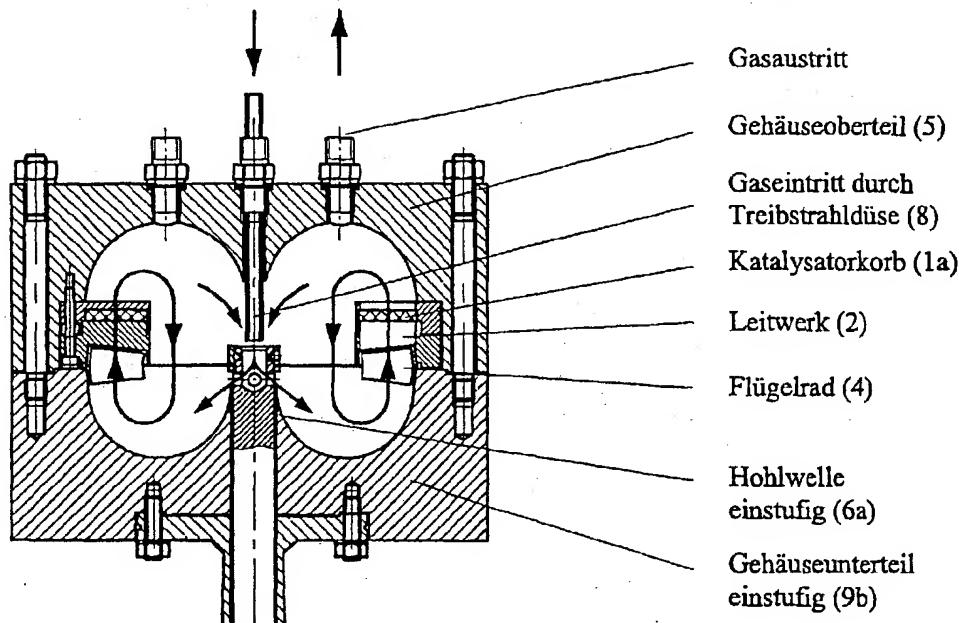
- Zusammenbauzeichnung -



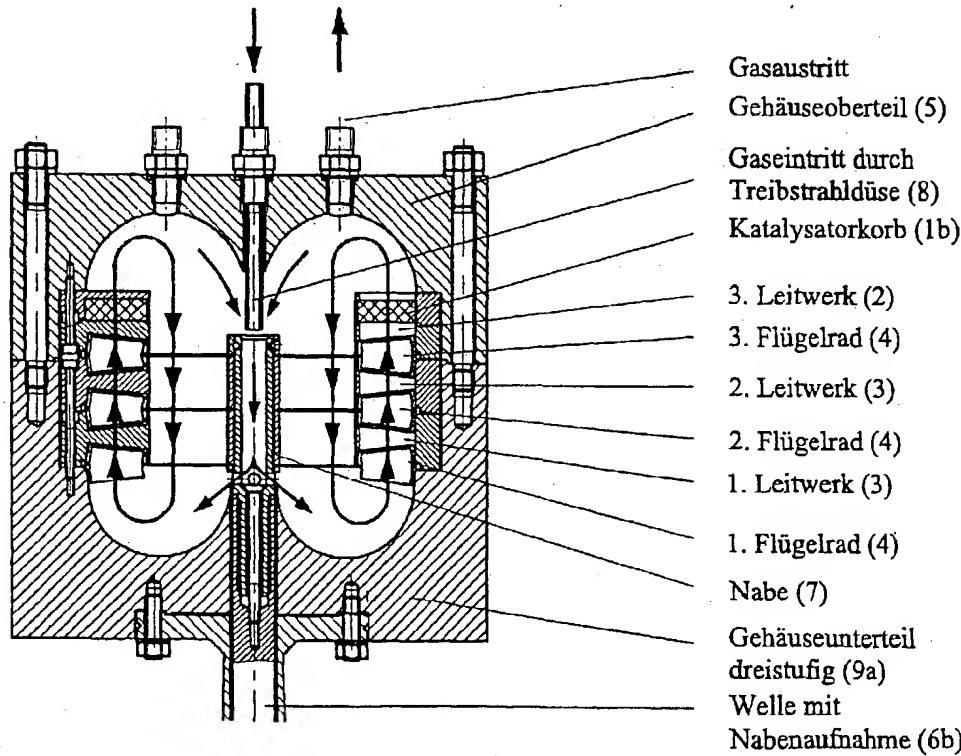
Figur 1

Reaktorvarianten

Figur 2: Einstufige Ausführung, kleiner Katalysatorkorb, Hohlwelle

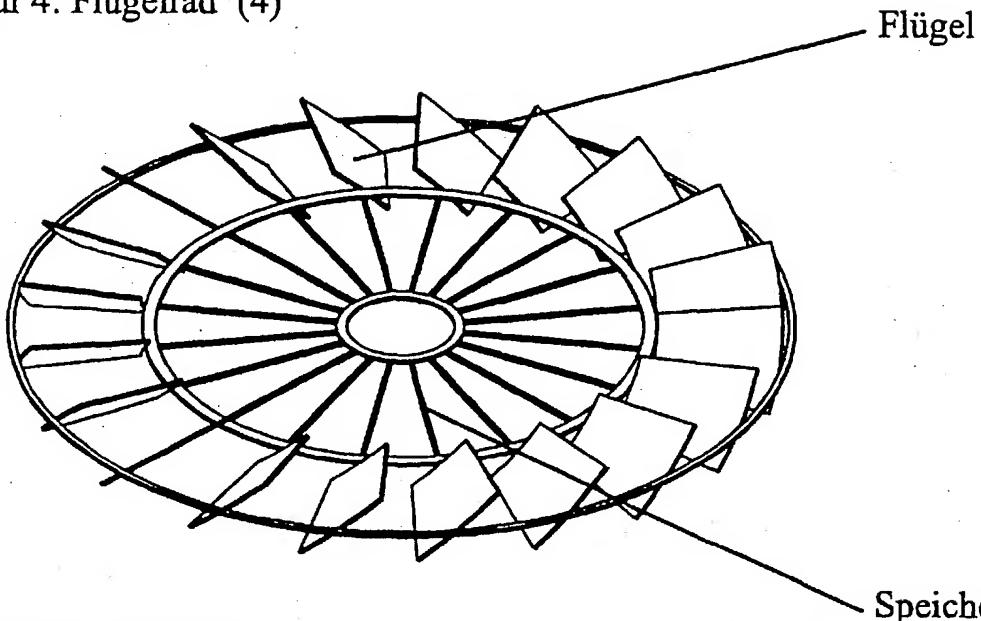


Figur 3: Dreistufige Ausführung, großer Katalysatorkorb, Nabe



Flügelrad und Leitwerk

Figur 4: Flügelrad (4)



Figur 5: Leitwerk (3)

